Manuscrit de DEA :

Etude d'un dispositif expérimental en vue de l'observation des bandes de Cameron de CO

#### SOMMAIRE

#### **INTRODUCTION GENERALE**

CHAPITRE 1 - Physico-chimie des nuages interstellaires

1.1. Introduction p.4

1.2. L'ion HCO<sup>+</sup> p.4 1.3. L'ion CO<sub>2</sub><sup>+</sup> p.4

 $1.5. L ton CO_2 p.4$ 

# **<u>CHAPITRE 2</u>** - Simulation informatique

- 2.1.Le problème physico-chimique p.6
  2.1.1. Conditions thermodynamiques p.6
  a.Température
  b.Vitesse de l'écoulement et pression
  2.1.2. Equations physico-chimiques p.6
  2.1.3. Valeurs des constantes p.6
  2.1.4. Equations cinétiques p.7
- 2.2. Traitement mathématique p.7
- 2.3. Résultats p.8
  - 2.3.1. Rapport de branchement p.8
  - 2.3.2. Résultats obtenus p.9
  - 2.3.3. Utilisation p.9

# **<u>CHAPITRE 3</u>** - Photomultiplicateur

- *3.1. Introduction p.12*
- 3.2. Principe du photomultiplicateur p.12
- 3.3. Appareillage actuellement utilisé p.12

#### CHAPITRE 4 - Etude photométrique

4.1. Montage actuel p.14 4.1.1. La chambre de réaction p.14 4.1.2. Le spectromètre UV p.14 4.2. Remarques sur le montage actuel p.14 4.3. Modélisation du nombre de photons p.15 4.3.1. Cas d'une source ponctuelle p.15 4.3.2. Cas d'une source plus large p.15 4.3.3. Ordres de grandeur et remarques p.18 4.4. Eléments optiques p.19 4.4.1. Les lentilles p.19 4.4.2. Les réflecteurs p.20 a. Différents types de miroirs p.20 a.a. Miroir sphérique p.20 a.b. Miroir parabolique p.21 a.c. Miroir elliptique p.21 b. Problèmes technologiques dus aux longueurs d'onde p.21

# CHAPITRE 5 - Synthèse

- 1. Simulation numérique p.22
- 2. Photomultiplicateur p.22
- 3. Optique p.22

# **ANNEXE**

- Bibliographie et listing informatique

#### **INTRODUCTION**

Le stage de DEA consiste en l'étude d'un dispositif, en vue de l'identification des états excités de CO ainsi que des rapports de branchement pour la réaction HCO<sup>+</sup>+e $\rightarrow$ CO+H. Le monoxyde de carbone peut être excité a( ${}^{3}\Pi_{u}$ , v") et induit alors des bandes de Cameron en se désexcitant. Le DPAM veut procéder à l'étude de ces bandes pour : CO<sub>2</sub><sup>+</sup>+e $\rightarrow$ CO+O. Les résultats obtenus serviront à l'étude de la réaction HCO<sup>+</sup>+e $\rightarrow$ CO+H.

Ce mémoire présentera différents aspects expérimentaux et, dans un premier chapitre, s'attachera à la physico-chimie de  $HCO^+$  et de  $CO_2^+$ .

Une étude exploratoire, menée à l'aide d'un spectromètre adapté, a déjà permis l'obtention de quelques bandes de CAMERON issues de CO  $a({}^{3}\Pi_{u}, v'') \rightarrow x({}^{1}\Sigma_{1}, v')$ . Mais le rapport signal sur bruit ne permettait pas une analyse poussée. Une étude technique du dispositif donne matière à la suite de l'exposé.

Un deuxième chapitre fait la synthèse sur un aspect important de l'étude du dispositif : la source diffuse, dont est issu le rayonnement UV, est un plasma contenant diverses espèces telles  $Ar^+$ ,  $CO_2^+$ ,  $CO^*$ , e. La concentration de ces espèces varie le long de l'écoulement. Un programme informatique aura pour but la simulation de ces concentrations et en particulier celle de CO\* a( ${}^{3}\Pi_{u}$ , v"). Pour récupérer sur le spectromètre UV un maximum de photons, on aura intérêt à l'orienter vers une portion de l'écoulement où la concentration en CO\* est maximale.

Un troisième chapitre permettra de s'interroger sur l'opportunité du matériel utilisé pour la détection. S'il paraît évident que l'on ne puisse rien modifier à l'intérieur du spectromètre, il faut en revanche s'attacher, sur la plage de longueur d'onde étudiée, à garder un rendement quantique du photomultiplicateur qui soit acceptable.

Un quatrième chapitre développera une étude optique du dispositif. Mettant en jeu des éléments de photométrie, elle consistera à optimiser le nombre de photons arrivant sur le réseau du spectromètre UV. En pratique, il s'agira d'une part, de bien positionner la source diffuse de photons UV par rapport à la fente d'entrée du spectromètre, d'autre part de voir si un réflecteur ou des lentilles peuvent améliorer l'intensité du rayonnement.

Un cinquième chapitre synthétisera l'ensemble des résultats tandis qu'une annexe présentera des spectre de bandes de Cameron que l'on a pu obtenir.

#### CHAPITRE 1

# PHYSICO-CHIMIE DES NUAGES INTERSTELLAIRES

#### 1.1. Introduction

L'avènement de la radioastronomie a permis l'étude des premières molécules interstellaires dès la fin de la seconde guerre mondiale. Une nouvelle discipline s'est peu à peu développée dans les années 60 : l'ASTROCHIMIE.

Si actuellement on a pu mettre en évidence une bonne centaine de molécules interstellaires, il n'en est pas moins vrai qu'on les a observées en proportions différentes dans le milieu interstellaire. Ainsi CO est considérée, après H et He, comme la molécule la plus abondante (1). Les réactions physico-chimiques produisant CO sont très étudiées. Au DPAM, on étudie plus particulièrement la RECOMBINAISON DISSOCIATIVE (notée RD) qui termine une chaîne de réactions pour donner de façon générale:

$$AB^{+}+e \rightarrow A+B \tag{1}$$

Le monoxyde de carbone peut être créé par:

$$HCO^+ + e \rightarrow CO + H$$
 (2a)

$$CO_2^+ + e \rightarrow CO + O$$
 (2b)

#### 1.2. <u>L'ion HCO</u>+

Cet ion est présent dans les nuages interstellaires denses qui sont opaques au rayonnement UV (Fig 1 et 2). Rappelons qu'il y règne typiquement une température de 10K et que la densité y est comprise entre  $10^2$  et  $10^7$  cm<sup>-3</sup>. Le cycle de formation de HCO<sup>+</sup> est (**1-2**):

$$rytcosmique+H_2 \rightarrow H_2^+ + e$$
(3a)

$$H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H \tag{3b}$$

$$H_3^+ + CO \rightarrow HCO^+ + H_2 \tag{3c}$$

La connaissance de la physico-chimie de HCO<sup>+</sup> passe par celle des états électroniques du CO produit par RD de HCO<sup>+</sup>. En effet, CO est crée soit dans son état électronique fondamental  $X(^{1}\Sigma_{1}, v')$ , soit dans l'état électronique excité noté CO\*  $a(^{3}\Pi_{u}, v'')$ . On peut écrire :

$$HCO^++e \rightarrow CO+H$$
 (4a)

$$HCO^{+}+e \rightarrow CO^{*}+H \tag{4b}$$

Chaque forme constitue une voie de sortie à laquelle on attribue un rapport de branchement. Ce dernier indique l'importance relative de la voie considérée. Expérimentalement, la détermination des rapports de branchement se fait par l'étude de la désexcitation de CO\*  $a(^{3}\Pi_{u}, v'')$  qui émet alors des photons UV. Une telle étude n'a jamais été faite pour le CO provenant de la RD de HCO<sup>+</sup>. En revanche, elle l'a été et de façon quantitative pour le CO provenant de la RD de CO<sub>2</sub><sup>+</sup> par Wauchop & Broïda en 1972 (**3**). Le DPAM de Rennes se propose de reprendre cette étude, les résultats obtenus pour CO<sub>2</sub><sup>+</sup> pouvant servir de calibreur pour ceux de HCO<sup>+</sup>.

#### 1.3. <u>L'ion CO<sup>+</sup></u><sub>2</sub>

Cet ion est présent dans les atmosphères de Vénus et de Mars, produit par photoionisation de  $CO_2$  selon :

$$CO_2 + h\upsilon \rightarrow CO_2^+ + e$$
 (5)

 $CO_2$  peut également générer CO par RD de  $CO_2^+$ . Le monoxyde de carbone ainsi créé présente divers états électroniques tout comme celui obtenu à partir de HCO<sup>+</sup>.

$$CO_2^+ + e \rightarrow CO + O$$
 (6a)

$$CO_2^+ + e \rightarrow CO^* + O$$
 (6b)

 $\text{CO}^*$  subit une transition  $a(^{3}\Pi_{u}, v'') \rightarrow x(^{1}\Sigma_{1}, v')$  qui induit des bandes de Cameron. Ces dernières se situent dans l'UV entre 1700 et 2600 Å. Le but du stage de DEA est l'observation du système des bandes de Cameron.



Fig. 1 : Nuages diffus Chimie de l'oxygène

Fig. 2 : Nuages diffus Chimie du carbone

# **CHAPITRE 2**

#### **SIMULATION INFORMATIQUE**

#### 2.1. Le problème physico-chimique

Le but de ce chapitre est la simulation de différentes concentrations d'espèces présentes le long d'un écoulement. Les espèces que l'on y trouve sont :

He  $^+$ ,  $He_2^+$ , He<sup>M</sup>, Ar, Ar $^+$ , CO<sub>2</sub>,  $CO_2^+$ , e, CO, O.

L'écoulement peut se schématiser par :



Fig. 3

L'hélium sert de gaz porteur. On note x l'abscisse le long de l'écoulement.

#### 2.1.1. Conditions thermodynamiques

#### a) Température

Dans sa configuration actuelle, le montage permet de travailler à une température ambiante. On peut définir des températures pour chaque espèce :

- température des neutres (ambiante),
- température ionique qui, en raison des collisions, est identique à la température précédente.
- température électronique (supérieure ou égale aux précédentes).

#### b) Vitesse de l'écoulement et pression

En régime dynamique, ces deux grandeurs sont corrélées ; ce sont elles que l'on fera principalement varier dans la simulation. Une plage de variation typique est :

$$5000 \text{ cms}^{-1} \le v \le 20000 \text{ cms}^{-1}$$

$$0,5$$
Torr $\le P \le 1,5$ Torr

#### 2.1.2. Equations physico-chimiques

$$Ar^{+}+CO_{2} \xrightarrow{k} CO_{2}^{+}+Ar$$
(7)

$$CO_2^+ + e^{\alpha} \rightarrow CO^* + O(f)$$
 (8a)

$$CO_2^+ + e^{\alpha} \rightarrow CO + O(1 - f)$$
 (8b)

$$CO^* + CO_2 \xrightarrow{k_q} CO + CO_2 \tag{9}$$

#### **<u>Remarques</u>**:

- k,  $\alpha$ , k<sub>q</sub> sont les constantes de vitesse des réactions.
- La réaction 8 présente 2 voies de sortie [CO+O

CO\*+O.

#### 2.1.3. <u>Valeurs des constantes</u>

Des valeurs pour k, a, k<sub>q</sub> existent dans la littérature (ref 3,4,5) :

$$k=7 \ 10^{-10} \ cm^3 s^{-1}(4), \alpha=3.8 \ 10^{-7} \ cm^3 s^{-1}(5), \ k_0=3 \ 10^{-11} \ cm^3 s^{-1}(3)$$

Le rapport de branchement de la voie (CO\*+O) est, quant à lui, inconnu. On peut dans un premier temps le fixer à 50% ; ceci donnera matière à discussion dans le chapitre concernant les résultats. Un autre paramètre intervient qui n'apparaît pas dans les équations précitées ; CO\* présente un temps de vie  $\tau$  radiatif et subit la transition a( ${}^{3}\Pi_{u}$ , v") $\rightarrow$ x( ${}^{1}\Sigma_{1}$ , v').

#### 2.1.4. Equations cinétiques

Ce sont les conséquences directes des équations physico-chimiques.

La disparition de Ar<sup>+</sup> peut s'écrire : 
$$\frac{d[Ar^+]}{dt} = -k[Ar^+]CO_2]$$
(10)

L'évolution de la concentration  $CO_2^+$  en peut s'écrire :

$$\frac{d[CO_2^+]}{dt} = k[Ar^+]CO_2] - \alpha[CO_2^+]e]$$
(11)

L'évolution de la concentration en CO\* peut s'écrire :

$$\frac{d[CO^*]}{dt} = f\alpha [CO_2^+]e - k_q [CO_2^+]CO_2 - [CO^*]\tau$$
(12)

L'électroneutralité en tout point de l'écoulement permet d'écrire :  $|Ar^+|+[CO_2^+]+[e]$  (13)

On définit la vitesse d'un élément de volume de l'écoulement par : 
$$v = \frac{dx}{dt}$$
 (14)

Dans la suite du propos, on remplace  $\frac{d}{dt}$  par  $v\frac{d}{dx}$ , soit :

$$v \frac{d[Ar^+]}{dx} = -k[Ar^+]CO_2]$$
(15)

$$v \frac{d[CO_{2}^{+}]}{dx} = -k[Ar^{+}]CO_{2} - \alpha[CO_{2}^{+}]e]$$
(16)

$$v \frac{d[CO^*]}{dx} = f \alpha [CO_2^+]e] - k_q [CO^*]CO_2] - [CO^*] \tau \qquad (17)$$

#### 2.2. <u>Traitement mathématique</u>

La première équation mathématique se résout analytiquement selon :

$$\left[\operatorname{Ar}_{+}\right] = \left[\operatorname{Ar}_{+}\right]_{x=0} \exp\left(-k\frac{\left[\operatorname{CO}_{2}\right]x}{v}\right)$$
(18)

Rappelons que l'abscisse x=0 correspond au lieu d'injection de  $CO_2$  (schéma). Les évolutions de  $[CO_2^+]$  et de  $[CO_2^+]$  relèvent du calcul numérique. On a à traiter un système d'équations différentielles non linéaires et couplées. La solution de calcul numérique retenue est un développement en puissances de la formule de Taylor-Mac Laurin. Pour des problèmes de convergence, le développement est poussé à l'ordre 2. Soit le développement :

$$f(x_0+h) \approx f(x_0) + h \frac{\partial f}{\partial x}\Big|_{x=x_0} + \frac{h^2}{2!} \frac{\partial^2 f}{\partial x^2}\Big|_{x=x_0}$$
(19)

Pour avoir :  $\frac{h\partial f}{\partial x}\Big|_{x=x_0} >> \frac{h^2}{2!} \frac{\partial^2 f}{\partial x^2}\Big|_{x=x_0}$ , le pas de l'itération devra être très petit. Connaissant les

concentrations à une origine donnée, une itération permet de les connaître pour toute abscisse  $(\geq 0)$  donnée. A l'origine, lieu d'injection de CO<sub>2</sub>, on a :  $[Ar^+]_{x=0} = [e]_{x=0}$  (20) Cette relation résulte de l'électroneutralité du plasma.

$$\left[\text{CO}_{2}\right]_{x=0} = \frac{n_{\text{tot}} \times Q_{\text{CO}_{2}}}{\left(Q_{\text{He}} + Q_{\text{CO}_{2}} + Q_{\text{Ar}}\right)}$$
(21)

avec  $n_{tot}$  = densité totale définie selon :  $n_{tot}$  = 9,657 10<sup>18</sup> P/T, avec P exprimée en Torr (mm de Hg) et T exprimée en K. L'équation donnant  $n_{tot}$  s'obtient à partir de la loi des gaz parfaits, avec Q<sub>He</sub>, Q<sub>CO2</sub>, Q<sub>Ar</sub> qui sont respectivement les débits injectés en Hélium, CO<sub>2</sub> et Argon. Ils sont usuellement exprimés en l atm min<sup>-1</sup>.

$$[CO_2^+]_{x=0} = 0$$
 (22)

Au lieu de l'injection de  $CO_2$ , on suppose que  $CO_2^+$  n'est pas encore formé ; il en est de même pour  $CO^*$ .

$$[CO_*]_{x=0} = 0$$
 (23)

La seule approximation qui a été faite lors de l'élaboration du programme est de supposer que <u>la</u> concentration en  $CO_2$  est constante le long de l'écoulement.

$$\frac{d[CO_2]}{dx} = 0 \tag{24}$$

Ceci se conçoit aisément, vu que la concentration en  $[CO_2]$  est très largement supérieure à toutes les autres. Les calculs préliminaires ont donné, compte tenu de cette approximation et en remplaçant [e]par  $[Ar^+]+[CO_2^+]$ .

• pour  $[CO_{2}^{+}]$ :  $\frac{\underline{d}[CO_{2}^{+}]}{dx} = \frac{1}{v} \left( k [Ar^{+}]CO_{2}] - \alpha [CO_{2}^{+}] Ar^{+} - \alpha [CO_{2}^{+}]^{2} \right)$ (25)

$$\frac{2^{\underline{eme}} \text{ ordre}}{dx^2} :$$

$$\frac{d^2 [CO_2^+]}{dx^2} = \frac{1}{v^2} \begin{pmatrix} -\alpha k [Ar^+] [CO_2] [CO_2^+] - k^2 [Ar^+] [CO_2]^2 - \alpha k [Ar^+]^2 [CO_2] \\ + 3\alpha^2 [Ar^+] [CO_2^+]^2 + 2\alpha^2 [CO_2^+]^3 + \alpha^2 [Ar^+]^2 [CO_2^+] \end{pmatrix}$$
(26)

1<sup>er</sup> ordre :

• pour [CO\*] :

$$\frac{d[CO_*]}{dx} = \frac{1}{v} \left( f \alpha \left[ Ar^+ \right] CO_2^+ \right] + f \alpha \left[ CO_2^+ \right]^2 - k_q \left[ CO_2 \left[ CO_* \right] - \left[ CO_* \right] / \tau \right) \right]$$

$$2^{\hat{e}me} \text{ ordre :}$$
(27)

$$\frac{d^{2}[CO^{*}]}{dx^{2}} = \frac{1}{v^{2}} \begin{pmatrix} f \alpha k [Ar^{+}]^{2} [CO_{2}] + f \alpha k [Ar^{+}] [CO_{2}] [CO_{2}^{+}] + 2k_{q} [CO_{2}] [CO^{*}] / \tau \\ + k_{q}^{2} [CO_{2}]^{2} [CO^{*}] + [CO^{*}] / \tau^{2} - k_{q} f \alpha [Ar^{+}] [CO_{2}] [CO_{2}^{+}] \\ - 3f \alpha^{2} [Ar^{+}] [CO_{2}^{+}]^{2} - 2f \alpha^{2} [CO_{2}^{+}]^{3} - f \alpha^{2} [Ar^{+}]^{2} [CO_{2}^{+}] \\ - k_{q} f \alpha [CO_{2}] [CO_{2}^{+}]^{2} - f \alpha [CO_{2}^{+}]^{2} / \tau - f \alpha [CO_{2}^{+}] [Ar^{+}] / \tau \end{pmatrix}$$
(28)

Vue la longueur des expressions, il faut passer par des intermédiaires de calcul lors de la programmation.

#### 2.3. Résultats

#### 2.3.1. Rapport de branchement f -(tableau 1 et figure 4)-

La littérature scientifique ne comporte pas de données concernant les rapports de branchement de la réaction.

$$CO_{2}^{+} + e \rightarrow \begin{bmatrix} CO^{*} + O \\ CO + O \end{bmatrix}$$
(29)

Dans la simulation numérique, on fait varier f pour voir les modifications que cela entraîne. En faisant varier f de 10 à 90 % dans la simulation, il ressort qu'une variation radicale de f n'induit ni décalage ni rétrécissement de la région dans laquelle [CO\*] est maximale.

#### 2.3.2. Résultats obtenus -(tableau 2 et figures 5-7)-

Les résultats sont cohérents avec les profils de concentration attendus :

- décroissance de [Ar<sup>+</sup>]et[e] le long de l'écoulement.
- courbes présentant un maximum pour  $[CO_2^+]$  et  $[CO_3^+]$ .

#### 2.3.3. Utilisation

Le but général fixé est d'observer les bandes de Cameron. Il faut qu'un nombre maximal de photons UV puissent parvenir sur le spectromètre ; il faut donc pointer ce dernier vers une région où la concentration en CO\* est maximale. La simulation permet de répondre à cette question. Des suggestions seront apportées lors de la synthèse des résultats à la fin du rapport.

Rapport branchement vers CO <sup>*</sup> (a <sup>3</sup> Π)	20%	50%	70%	90%	
Lieu du maximum de concentration en CO <sup>*</sup> (cm)	entration 21,7		21,6	21,6	
	1,18 10 <sup>9</sup>	2,9 10 <sup>9</sup>	4,11 10 <sup>9</sup>	5,29 10 <sup>9</sup>	

Tableau 1

Pression :0.5 Torr

Vitesse de l'écoulement					
(cms <sup>-1</sup> )	17000	15000	13000	10000	8000
Pression (Torr)	0,5	0,6	0,8	1,1	1,3
Position de					
[CO*] max (cm)	21,5	17,1	13	8,4	6,1
Concentration					
en CO*	2,94 10 <sup>9</sup>	2,9 10 <sup>9</sup>	2,8 10 <sup>9</sup>	2,7 10 <sup>9</sup>	2,6 10 <sup>9</sup>
$[CO_*]_{max}(cm^{-3})$					
Plage sur laquelle					
[CO*] <sub>max</sub> (à 1 % près-cm)	14,7	11,1	10,5	6	3,9

Tableau 2

Conditions communes à toutes les données :

Densité électronique initiale :  $10^{10}$  cm<sup>-3</sup> Température :  $300^{\circ}$ K

Débit Hélium : 24 l atm min<sup>-1</sup>, Débit  $CO_2$  : 0,01 l atm min<sup>-1</sup>, Débit Argon : 0,04 l atm min<sup>-1</sup>

Vitesse de l'écoulement : 17000 cms<sup>-1</sup>







Fig. 5



Fig. 6



Fig. 7

# CHAPITRE 3 PHOTOMULTIPLICATEUR

# 3.1. Introduction

Le spectromètre, décrit dans le deuxième chapitre, est couplé à un photomultiplicateur pour l'analyse du rayonnement recueilli. Le tableau ci-dessous indique, pour le système de Cameron de CO, les longueurs d'onde auxquelles il y a émission.

V"	0	1	2	3	4	5	6	7	8
v'									
0	2060,0	2154,6	2257,7	2369,0	2491,0				
1	1989,3			2277,0	2388,8	2510,9			
2	1925,8					2409,2	2531,9		
3	1866,0						2430,3	2553,3	
4	1812,0							2451,8	2575,3
5	1765,0								

Tableau 3

Bien que les bandes les plus intenses se trouvent dans le domaine spectral 2400-2600Å, il faut utiliser un photomultiplicateur dont le rendement quantique est le meilleur possible entre1765-2575Å.

# 3.2. Principe du photomultiplicateur

Un photomultiplicateur exploite l'effet photoélectrique ; la figure N°8 en illustre le fonctionnement :



#### Fig. 8

Pour une longueur d'onde inférieure à  $\lambda_{seuil}$ , la lumière qui arrive au niveau de la photocathode provoque l'émission d'électrons. Les photoélectrons sont accélérés électrostatiquement et focalisés sur une première dynode. Pour un électron arrivant sur la dynode, celle-ci libère un certain nombre d'électrons secondaires qui seront à leur tour accélérés et focalisés sur une deuxième dynode. De proche en proche, on obtient un phénomène d'avalanche. Les électrons produits par la dernière dynode seront collectés par l'anode ; un pont de dynodes peut en contenir une quinzaine.

# 3.3. Appareillage actuellement utilisé

Le photomultiplicateur VUV employé jusqu'à présent est un HAMAMATSU R1459. Ses caractéristiques sont les suivantes:

Type No.	Remarks	Curve Code	Range (nm)	Peak Wave- length (nm)	Photo- cathode material	Windo w Materia l	Out line No.	Dynode Structur e No. of Stages
R1459	For VUV detection, MgF2 window Cs-I Photocathode	100M	115-200	140	Cs-I	MF	1	B/11

Tableau 4

Le diagramme suivant permet de remarquer que ce photomultiplicateur (code 100M) a un rendement quantique maximal de 15% autour de 1400Å. De plus, il n'est pas sensible au rayonnement UV qui se situe au delà de 2000Å. Or la plage 2000-2600Å présente justement les bandes de CAMERON les plus intenses. Il faut donc utiliser un deuxième photomultiplicateur pour  $\lambda \ge 2000$ Å.



Figure 9

Courbes de rendement quantique des photomultiplicateurs HAMAMATSU R431S (200S – Jaune pointillé) R1459 (100M – Bleu clair)

# CHAPITRE 4 ETUDE PHOTOMETRIQUE

Le montage, dans sa configuration actuelle, laisse apparaître un certain nombre d'imperfections auxquelles il est aisé de remédier. L'étude effectuée ici s'appuie sur des considérations géométriques élémentaires.

#### 4.1. Montage actuel

Un schéma ci joint décrit sommairement le montage (Fig. 10). Trois éléments interviennent dans la suite du propos :

- la chambre dans laquelle a lieu la création de CO<sup>\*</sup> (l'écoulement est signalé),
- le spectromètre UV,

• le tube raccordant les 2 éléments précédents et dont les caractéristiques sont précisées : 50cm de longueur - 4cm de diamètre.

#### 4.1.1. La chambre de réaction

Le plasma crée dans cette partie du montage a pour support un gaz porteur(ex He). La présence de  $CO^*$  constitue une source diffuse de photons UV.

#### 4.1.2 Le spectromètre UV

Le laboratoire dispose d'un monochromateur de haute résolution pour le domaine spectral de 40 à 200 nm. L'appareil présente 2 fentes fixes : une fente d'entrée et une fente de sortie sur le photomultiplicateur. Le réseau se déplace, effectuant translation et rotation à l'aide de bras articulés (cf Fig. 11 - ref 6).

#### 4.2. Remarques sur le montage actuel

On augmenterait manifestement le nombre de photons parvenant au réseau en augmentant l'angle solide sous lequel, depuis la fente, on voit la source. Ceci revient à diminuer la distance X, distance fente d'entrée-source de photons (Fig. 12). A ce propos, il est à noter que la diffraction due à la fente ne sera nullement affectée par le rapprochement de la source. On ne pourra, tout au plus, observer qu'un accroissement en intensité des taches de diffraction.



Fig. 12

Il est essentiel d'avoir toujours à l'esprit que pour un spectromètre donné le nombre de photons récupérables sur le réseau est limité. La grandeur physique attachée à cette notion est

l'OUVERTURE du spectromètre. Elle est définie comme étant le rapport de la surface du réseau utilisé sur la distance réseau-fente d'entrée. L'expérience a montré que le réseau ne se déplace guère, donc ici:

Ouverture = 
$$s/D \sim 100/300 \sim 0.3$$
cm (30)

On notera que dans le cas présent, l'ouverture de l'appareil est extrêmement faible (Fig. 12). La suite de l'exposé se proposera de quantifier le nombre de photons recevables sur le réseau en absence de tout élément optique annexe (miroir, lentille). Partant du cas simple d'une source ponctuelle, on sera amené à décrire un modèle applicable à une source diffuse parallélépipédique pas trop étendue. Cette approche, certes grossière, peut permettre d'évaluer le gain de photons corrélé au rapprochement de la source par rapport à la fente.

# 4.3. Modélisation du nombre de photons

#### 4.3.1. Cas d'une source ponctuelle



Fig. 13

Soient n<sub>ph</sub>, nombre de photons émis par la source et n, nombre de photons reçus sur le réseau

$$n = n_{\rm ph} \frac{\rm HL}{4\pi X^2} \tag{31}$$

 $\frac{\text{HL}}{4\pi X^2}$  est la fraction de photons qui franchit la fente. Il s'agit malheureusement d'un cas

physiquement non réaliste.

# 4.3.2. Cas d' une source plus large

L'écoulement dont est extrait la source diffuse est de symétrie cylindrique ; l'expérience montre que le diamètre de la base cylindrique est d'environ 8 cm. Le prochain calcul s'attachera à décrire une source étendue, parallélépipédique, à base carrée ; il s'agit en quelque sorte d'une extension du cas source ponctuelle.



Fig. 14

Soient s : surface du réseau,

S : surface de la source diffuse,

S' : surface de la source utile du point de vue de la fente,

P: profondeur (en fait coté d'un carré),

 $d_{phsource}$ : nombre de photons par cm<sup>3</sup> supposé constant dans le volume de la source.



Fig. 10





Coupes du spectromètre UV

On obtient alors, quelque soit le cas :

$$n = d_{\text{phsource}} S' P \frac{HL}{4\pi X^2}$$
(32)

#### **Discussion de la formule :**

La relation n'est valable que pour une source peu étendue autour d'un point central car la surface de la source doit être en tout point à la distance x de la fente d'entrée. A mesure que la source "s'approche" de la fente, le parallélépipède utile se trouve tronqué. Un schéma à deux dimensions permet d'appréhender le problème ; tout se passe à l'intérieur d'une surface délimitée par les 2 rayons extrêmes fixés par le réseau.

Les premier et deuxième cas s'inscrivent dans le cadre de la formule donnée plus haut. Il est à noter que le cas n°2 marque une limite : la surface S épouse juste la restriction imposée par les rayons limites. Le troisième cas, lui, présente clairement une surface tronquée. On peut essayer de proposer une relation dans le cas n°3.

#### Vues de dessus



Une approximation grossière consiste, pour la fente, à voir une surface S' qui est inférieure à S. L'utilisation du théorème de Thalès permet d'obtenir simplement :

$$S' = \frac{XS}{X_{lim}} \text{ où } X_{lim} = \frac{DS}{s}$$
(33)

alors :

$$n = d_{\text{phsource}} PS \frac{HL}{4\pi X_{\lim} X}$$
(34)

#### 4.3.3. Ordres de grandeur et remarques

La formule (31), valable aux grandes distances, fournit une valeur très optimiste aux distances plus petites. Le nombre de photons récupérés est alors proportionnel à  $\frac{1}{X^2}$ . La formule (34), quant à elle, est mieux adaptée aux faibles distances mais fournit un nombre de photons pessimiste car le volume utile est sous-estimé dans le calcul. Le nombre de photons est alors proportionnel à  $\frac{1}{XX_{lim}}$  soit à  $\frac{1}{X}$ .

#### **Conclusion**:

On obtient un encadrement du nombre prévisible de photons.

n≺X⁻α	avec	$1 \le \alpha \le 2$
-------	------	----------------------

(35)

Il est rassurant de constater que, quoiqu'il arrive, on récupèrera plus de photons en rapprochant la source. Un calcul simple permet d'évaluer le gain que l'on obtiendrait en faisant varier de 50 cm à 15 cm la distance source-fente.

Distance source- fente (cm)	45	40	35	30	25	20	15
Gain majoré par rapport à X = 50 cm	1,2	1,6	2,0	2,8	4	6,3	11,1
Gain minoré par rapport à X = 50 cm	1,1	1,3	1,4	1,7	2	2,5	3,4

Tableau 5

On remarque que l'encadrement est de plus en plus large à mesure que l'on rapproche la source de la fente.

#### 4.4. Eléments optiques

On peut également se servir de lentilles ou de miroirs concaves pour améliorer le nombre de photons reçus sur le réseau du spectromètre.



Fig. 16

# 4.4.1. <u>Les lentilles</u> <u>Montage proposé :</u>



Fig. 17

Il faut utiliser une lentille dont le verre est le plus transparent possible dans la plage de longueur d'onde 1700-2600 Å. Les courbes présentées ci-dessous sont tirées de catalogues d'optique MELLES GRIOT et ORIEL.



Fig. 18

#### Fig. 19

Dans les deux cas, l'option "ULTRAVIOLET GRAD FUSED SILICA" (UVGSFS) est la mieux adaptée au besoin de l'expérience. Le facteur de transmission est satisfaisant dès 1600 Å pour se stabiliser à 90% à partir de 2000 Å sur toute la plage contenant les bandes de Cameron. Il serait hasardeux de quantifier à l'aide de formules le gain en photons que l'on pourrait obtenir par ajout d'une lentille. Toutefois, le nombre de photons reçus par le réseau ne peut être qu'amélioré.

#### 4.4.2 Les réflecteurs

Dans la configuration actuelle du montage, les photons émis dans la direction opposée au spectromètre UV sont irrémédiablement perdus. Une amélioration du gain en photons peut passer par une récupération des photons perdus ; pour ce faire, l'utilisation d'un réflecteur métallique est envisageable.

#### a. Différents types de miroirs

Trois types de miroirs sont envisageables :

- le miroir concave sphérique,
- le miroir concave parabolique,
- le miroir concave elliptique.

Des considérations de coût vont départager les trois propositions.

#### a.a. Miroir sphérique

Placer la source au point focal permet d'obtenir des rayons parallèles après réflexion. De plus , on a : f =-r/2



Fig. 20 **a.b. <u>Miroir parabolique</u>** 



# Fig. 21

# a.c. Miroir elliptique

Placer la source au point focal primaire permet de focaliser les rayons au point focal secondaire.



Fig. 22

#### b. Problèmes technologiques dus aux longueurs d'onde

Le matériau utilisé dans l'UV est l'aluminium mais, au contact de l'air, celui-ci se transforme en ALUMINE. Les propriétés optiques étant radicalement modifiées, il faut protéger les surfaces. Deux possibilités se présentent :

- revêtement en silice,
- revêtement en MgF<sub>2</sub>.

# CHAPITRE 5 SYNTHESE

Le but général de toute l'étude est la récupération d'un nombre maximal de photons UV sur le spectromètre. Pour y parvenir, trois études ont été menées :

# • <u>Simulation informatique</u> :

On a procédé à une simulation de la concentration en  $CO_2^+$ ,  $CO^* a(^3\Pi_u, v'')$  et e. Le paramètre pertinent est la vitesse de l'écoulement car cela permet de modifier les concentrations. Pour des raisons de commodité, il est souhaitable d'avoir une plage de concentration maximale pour  $CO^*$  la plus étendue possible. En effet, cela impose moins de contraintes pour l'orientation du spectromètre. Cela amène à proposer les paramètres suivants pour l'expérience :

Densité électronique initiale : 10<sup>10</sup> cm<sup>-3</sup> Vitesse de l'écoulement : 17000 cm s<sup>-1</sup> Pression : 0.5 Torr Température : 300 K Débit d'hélium (gaz porteur) : 24 l atm min<sup>-1</sup> Débit de CO<sub>2</sub> : 0.01 l atm min<sup>-1</sup> Débit d'argon : 0.04 l atm min<sup>-1</sup>

# • <u>Photomultiplicateur</u> :

Les bandes de Caméron se situent entre 1765 et 2575Å. Le photomultiplicateur utilisé actuellement n'est pas sensible au rayonnement  $\lambda > 2000$  Å, là où sont situées les bandes les plus intenses. La solution consisterait à se doter d'un nouveau photomultiplicateur. L'appareil que le DPAM sera amené à acquérir devra :

• être compatible avec celui existant, ceci de manière à éviter toute modification importante au niveau du spectromètre,

• présenter le même nombre de dynodes pour ne pas avoir à changer l'alimentation du photomultiplicateur,

• présenter une bonne sensibilité autour de 2300-2600 Å.

En réponse à toutes ces conditions, le PM R431 S HAMAMATSU (courbe de rendement quantique 200 S, cf. fig.4 - Chap3) est le plus performant. Le laboratoire s'en est doté pour la somme de 7950 FF.

# • **Optique** :

La démarche la plus immédiate consisterait à rapprocher la source diffuse de photons UV de la fente d'entrée du spectromètre. On obtiendrait par rapport à une distance source fente de 50 cm, un gain compris entre 3 et 11 en ramenant la distance source - fente à 15 cm.

#### **BIBLIOGRAPHIE**

(1) B.R. ROWE, J-C GOMET, A CANOSA, C REBRION and J.B.A. MITCHELL *J*. *Chem.Phys.*, <u>96</u>(2), (1992).

(2) A CANOSA

*Thèse* d'université p.8.

(3) T.S. WAUCHOP et H.P. BROIDA *J.Chem.Phys.*, <u>56</u>(1), 330, (1972).

# (4) R.J SHUL, B.L UPSCHULTE, R PASSARELLA, R.J KEESEE and A.W CASTLEMAN.

Soumis pour publication

# (5) C.S WELLER et M.A BIONDI

Phys Rev Lett., <u>19</u>, 547, (1967).

(6) M. MORLAIS

Journal de Physique appliquée, (1981).

# ANNEXE

```
' ce programme permet une simulation numérique de la concentration en
          différentes espèces le long d' un écoulement
'le but de la manip est de connaitre la distance à laquelle la concentration
        en co* est maximale le long du tube, ceci pour y placer un détecteur.
'constantes du problème:
                          'en cm3 s-1 vitesse de ar+ avec co2
'en cm3 s-1 vitesse de recombinaison dissociative
'en cm3 s-1 constante de quenching
        k#=5e-10
        alph#=3.8e-7
        ka#=3e-11
                          'en s: durée de vie du niveau
'rapport de branchement
        tau#=7e-3
        f#=.5
dim nom$(10),defaut#(10),pas(10),u$(10)
Sinclude "setpara.bas"
cls
'variables du problème
         densité électronique initiale à l'endroit de l'injection
'aro#
         concentration en co2+ au niveau de l'injecteur
'c2o#
'v#
         vitesse de l'écoulement
'p#
         pression en torr
't#
          température du milieu
't1#
         température en centaine de degrés
'ntot#
         densité totale
         débit d'hélium
débit en co2
'ahe#
'qco2#
         débit en argon
'gar#
'c2#
         densité en co2
'pas#
         pas de l'itération
'lac#
          longueur caractéristique
lg#
         longueur sur laquelle l'étude est faite
'ar#
         concentration enn argon + le long du tube
concentration en co2+ le long du tube
'c2x#
'elec#
          concentration en électrons
         concentration en co*
'costa#
         plage de l'étude en cm
'pla#
         nombres de points étudiés
indice de l'itération
'toto#
'i
dim ar#(3000),c2x#(3000),costa#(3000),elec#(3000),x(3000),y(3000)
corps du programme
open "i",#1,"simulpro.par"
for i=1 to 9
     input #1,defaut#(i)
     next i
paramètres
   ************
                                                   ":u$(1)="##.##^^^^"
nom$(1)="densité électronique initiale (cm-3)
nom$(2)="vitesse de l'écoulement (cm s -1)
nom$(3)="pression (torr)
                                                   ":u$(2)="######"
                                                   ":u$(3)="#.##"
nom$(4)="température (deg kelvin)
                                                   ":u$(4)="####"
nom$(5)="débit d'hélium-gaz porteur(l atm min-1)":u$(5)="###":pas(5)=1
nom$(6)="débit de co2(l atm min-1)
                                                   ":u$(6)="#.###
                                  nom$(7)="débit d 'argon(l atm min-1)
nom$(%)=" pas(cm) ": u$(%)="###.
nom$(%)=" plage d'étude (en cm) ": u$(%)="###
call setpar(1,7,2,2,nom$(),defaut#(),pas(),u$())
aro#=defaut#(1):v#=defaut#(2):p#=defaut#(3):t#=defaut#(4)
qhe#=defaut#(5):qco2#=defaut#(6):qar#=defaut#(7)
```

t1#=t#/100

```
c2#=(ntot#*qco2#)/(qhe#+qco2#+qar#)
lgc#=v#/(k#*c2#)
locate 10,1: print using "longueur caractéristique est de #.##^^^^ (cm):";lgc#
call setpar(8,9,12,2,nom$(),defaut#(),pas(),u$())
open "o",#1,"simulpro.par"
     for i=1 to 9
     print #1,defaut#(i)
    next i
close #1
pas#=defaut#(8):pla#=defaut#(9)
'on peut dorénavent calculer le nombre de points qui est pla#/pas#
                         toto#=int(pla#/pas#)
'initialisation des concentrations
       Mar#=aro#
       Mc2x#=0
       Mcosta#=0
                     cls
                     for i=1 to toto#
 ar#= aro#* exp((-k#*c2#*pas#*i)/v#)
       'la série des valeurs en xi constitue le calcul intermédiaire
      'ordre 1 du calcul de la concentration de co2+
      x1#=(k#*Mar#*c2#)-(alph#*Mc2x#*Mar#)
      x2#=(-alph#*Mc2x#*Mc2x#)
      x3#=x1#+x2#
      'ordre 2 du calcul de la concentration de co2+
      x4#=(-c2#*c2#*Mar#*k#*k#)-(Mar#*Mar#*c2#*alph#*k#)
      x5#=(-Mar#*c2#*Mc2x#*alph#*k#)
      x6\#=(3*Mc2x\#*Mc2x\#*Mar\#*alph\#*alph#)
      x7#=(Mc2x#*Mar#*Mar#*alph#*alph#)
      x8#=(2*Mc2x#*Mc2x#*Mc2x#*alph#*alph#)
      x9#=x4#+x5#+x6#+x7#+x8#
c2x#=Mc2x#+((pas#*(x3#))/v#)+((pas#*pas#*(x9#))/(2*v#*v#))
      'ordre 1 du calcul de la concentration de co*
      x10#=(f#*alph#*Mc2x#*(Mar#+Mc2x#))-(kg#*Mcosta#*c2#)
      x11#=-(Mcosta#/tau#)
      x12#=x10#+x11#
      'ordre 2 du calcul de la concentration de co*
     x13#=(Mar#*Mar#*c2#*f#*alph#*k#)
     x14#=(Mar#*c2#*Mc2x#*(f#*alph#*k#-kq#*f#*alph#))
     x15#=(-Mar#*Mar#*Mc2x#*f#*alph#*alph#)
     x16#=(-3*Mc2x#*Mc2x#*Mar#*f#*alph#*alph#)
     x17#=(-2*Mc2x#*Mc2x#*Mc2x#*f#*alph#*alph#)
      x18#=(-c2#*Mc2x#*Mc2x#*kq#*f#*alph#)
     x19#=(Mcosta#*c2#*c2#*kq#*kq#)
     x20#=((2*c2#*Mcosta#*kg#)/tau#)
     x21#=((-Mar#*Mc2x#*f#*alph#)/tau#)
     x22#=((-Mc2x#*Mc2x#*f#*alph#)/tau#)
     x23\#=(Mcosta\#/(tau\#*tau\#))
```

```
X24\#=x13\#+x14\#+x15\#+x16\#+x17\#+x18\#+x19\#+x20\#+x21\#+x22\#+x23\#
costa#=Mcosta#+((pas#*x12#/v#)+(pas#*pas#*x24#/(2*v#*v#)))
elec#=ar#+c2x#
if i/10=int(i/10) then
                     ar#(i/10)=ar#
                     c2x#(i/10)=c2x#
                     costa#(i/10)=costa#
                     elec#(i/10)=elec#
                 ##.##^^^^";pas#*i*10,ar#(i/10),c2x#(i/10),costa#(i/10)
' print using"
end if
Mar#=ar#:Mc2x#=c2x#:Mcosta#=costa#
a$=inkev$
if len(a$) <> 0 then end
                  next i
'traitement graphique
$include "c:macrocour.bas"
do
input "choix du graphe: Quit(0) ar+(1) co2+(2) co*(3) e-(4) ?";z
if z=0 then exit loop
    nbe= int(pla#/(10*pas#))
     for i=1 to nbe
             x(i)=i*10*pas#
            select case z
                case 1
                y(i) = ar#(i)
                case 2
                y(i) = c2x#(i)
                case 3
                y(i)=costa#(i)
                case else
y(i)=elec#(i)
            end select
      next i
 input " sauvegarder dans un fichier O/N";r$
input Sauvegaruer dans di Lini
select case r$
  case "o","O"
     input "nom du fichier (8 caractères max)";fs$
     fs$=fs$+".sig"
     open "o",#1,fs$
     for i=1 to nbe
      print #1 ,using "##.## ##.###*^^^";x(i),v(i)
     next i
     close #1
     case else
end select
xmin=0 : xmax=nbe*10*pas#
   call minmax(1,nbe,y(),ymax,ymin)
    ymax=ymax*1.1
   xtype$="lin":x$="###.##"
   ytype$="log":y$="-##.##^^^^"
```

```
xpus =1
call initgra
call gradux(xpas,x$)
call graduy(ypas,y$)
call courbe(x(),y(),nbe,0,1)
call modecurseur(x(),y(),nbe,x$,y$)
screen 0,0,0
loop
end
```